Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/EP05/001971

International filing date: 25 February 2005 (25.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: DE

Number: 10 2004 020 739.9

Filing date: 27 April 2004 (27.04.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 24 March 2005 (24.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

10 2004 020 739.9

Anmeldetag:

27. April 2004

Anmelder/Inhaber:

Merck Patent GmbH, 64293 Darmstadt/DE

Bezeichnung:

Verwendung von Flüssigkristall-Displays

sowie Verfahren zu deren Verwertung

IPC:

B 09 B, C 22 B

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

> München, den 7. Dezember 2004 **Deutsches Patent- und Markenamt** Der Präsident Im Auftrag

> > Hoiß

Merck Patent Gesellschaft mit beschränkter Haftung 64271 Darmstadt

Verwendung von Flüssigkristall-Displays sowie Verfahren zu deren Verwertung

Druckdatum: 27.04.2004 Speicherdatum: 27.04.2004

15

20

30

Verwendung von Flüssigkristall-Displays sowie Verfahren zu deren Verwertung

Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung von FlüssigkristallDisplays (LCD's = Liquid Crystal Displays) sowie Verfahren zu deren Verwertung.

Die Anzahl der hergestellten LCD's sowie die mittlere Display-Fläche pro Display nimmt seit Jahren kontinuierlich zu. Da LCD's seit kurzem auch in TV-Geräten eingesetzt werden, ist auch in den kommenden Jahren mit deutlichen Wachstumsraten zu rechnen.

Obwohl es sich bei den wichtigsten LCD-Anwendungen, wie z.B. in Notebooks, Bildschirmen und TV-Geräten, um langlebige Produkte handelt, spielt die Entsorgung beziehungsweise die Verwertung eine immer wichtigere Rolle. Die in der Vergangenheit übliche Beseitigung durch Deponierung der Elektronik-Bauteile wird zunehmend durch Verwertungsverfahren ersetzt. Dies insbesondere auch im Hinblick auf die EU-Direktive 2002/96/EC betreffend "Waste Electrical and Electronic Equipment" ("WEEE"), wonach LCD's ausgebaut und entsorgt bzw. verwertet werden müssen.

Für die Verwertung bestehen dabei drei unterschiedliche Alternativen:

- Das LCD wird aufgearbeitet und die Einzelkomponenten werden für das Originalprodukt wiederverwertet (z.B. Wiederaufarbeitung der Flüssigkristalle bzw. des Glases und deren Verwendung zur Herstellung von neuen LCD's).
 - 2. Das LCD wird aufgearbeitet und die Einzelkomponenten finden in anderen Industrien oder für andere Produkte Verwendung.

 Einzelne Bauteile, vorzugsweise ausgebaute Bauteile, der LCD's werden energetisch verwertet. In diesem Fall dient beispielsweise die Verbrennung der Kunststoffe der Energiegewinnung.

Die Verwertung von LCD-Glas zur Herstellung von neuen LCD's wird beispielsweise in der JP 2001/305501 A und der JP 2001/305502 A beschrieben. Nachteilig an dieser Art der Verwertung ist, dass das Glas sortenrein gesammelt werden muß, was sowohl mit einem hohen technischen als auch mit einem hohen finanziellen Aufwand verbunden ist, da für unterschiedliche Anwendungen generell auch unterschiedliche Gläser eingesetzt werden. So werden beispielsweise für STN (Super Twisted Nematic)-LCD's im allgemeinen Natron-Kalk-Gläser eingesetzt, während für TFT (Thin Film Transistor)-LCD's im allgemeinen Borosilikat-Gläser Verwendung finden.

15

20

25

30

10

5

Ein spezielles Verfahren zur Entsorgung von LCD's betreibt die Berliner Firma "VICOR" in einer Pilotanlage, bei dem die Displays manuell von Gehäuse- und Elektronikteilen sowie den Polarisationsfolien getrennt und anschließend auf eine Größe von etwa 1 cm geschreddert werden. In einem Ofen werden dann die Flüssigkristalle in einer Stickstoff-Argon-Atmosphäre bei maximal 400°C und Normaldruck abdestilliert. Nach deren Kondensation in einer Kältefalle, gelangen sie zur Endlagerung in eine Untertage-Deponie. Die Ofentemperatur darf bei der Behandlung 600°C nicht überschreiten, da sonst aufgrund der Molekülstruktur die Gefahr der Dioxinbildung besteht. Die anderen anfallenden Materialfraktionen Glas, Kunststoff und Leiterplatten sowie Bauelemente werden über übliche Recyclingwege weiterverarbeitet. Nachteilig an diesem Verfahren ist, dass die Abtrennung der Flüssigkristalle, die zum einen nur einen sehr geringen Gewichtsanteil am gesamten Display ausmachen (etwa 1 kg Flüssigkristalle pro Tonne Displays) und zum anderen noch ein Gemisch aus einer Vielzahl von unterschiedlichen Einzelsubstanzen darstellen, sowohl

technisch als auch finanziell sehr aufwändig ist, zumal die Flüssigkristalle anschließend deponiert werden. Eine Verwendung der zurückgewonnenen Flüssigkristalle in neuen LCD's ist nach heutigen Stand der Technik unwirtschaftlich.

5

Die Kunststoffe, wie beispielsweise Gehäuseteile aber auch Polarisationsfolien und andere Folien, werden im allgemeinen abgetrennt und entweder energetisch verwertet oder finden Verwendung für andere Produkte. Das thermische Recycling solcher Kunststoffe wird beispielsweise in der JP 2002/159955 A beschrieben.

10

15

20

Auch die Verwendung der Einzelkomponenten für andere Produkte ist bekannt. So benutzt die "Straßburger Aufbereitungsgesellschaft" in Hockenheim (SAG) ein Verfahren um LCD's zu Schaumglas zu blähen. Die verwendeten Anzeigen stammen dabei hauptsächlich vom Ausschuß aus der Produktion. Sie werden inklusiv der LC-Flüssigkeit mit Flachglas und Geräteglas vermischt, geschreddert, auf eine Korngröße von 40 μm staubfein gemahlen und mit einem Blähmittel vermengt. Anschließend werden bei 800 bis 850°C Schaumglaskügelchen von etwa 5 bis 15 mm Durchmesser gebläht. Das fertige Material hat Ähnlichkeit mit dem bekannten Blähton aus Hydrokulturen und ist verwendbar als Leichtzuschlagsstoff, als Füllstoff, als Wärmedämmmaterial, als Träger-Granulat oder als Absorptionsmaterial in der Bauindustrie, im Garten- und Landschaftsbau oder in der Abwassertechnik.

25

30

Darüber hinaus nimmt der Energieverbrauch kontinuierlich zu und es werden weltweit große Anstrengungen unternommen, Energie einzusparen. Insbesondere bei der industriellen Produktion ist man bemüht durch Verfahrensvereinfachungen, Wärmerückgewinnungen und/oder durch den Ersatz von Rohstoffen insbesondere die Kosten und/oder den Energieverbrauch zu reduzieren.

Ausgehend von dem bekannten Stand der Technik war es eine der Aufgaben der vorliegenden Erfindung nach wirtschaftlichen Verfahren zur Verwertung von LCD's zu suchen, die nicht die aus dem Stand der Technik bekannten Nachteile aufweisen. Insbesondere sollte die aufwändige Abtrennung der Flüssigkristalle sowie die aufwändige Sortierung der Displays nach unterschiedlichen Glassorten, unter Berücksichtigung der Energieeffizienz des Verfahrens, vermieden werden. Eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, neue Verwendungsmöglichkeiten für LCD's bereitzustellen.

Überraschenderweise wurde gefunden, dass es möglich ist, LCD's in einem einfachen und zudem wirtschaftlichen Verfahren stofflich zu verwerten.

15

20

25

30

werden.

10

5

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit ein Verfahren zur stofflichen Verwertung von LCD's, das dadurch gekennzeichnet ist, dass die LCD's zumindest teilweise, vorzugsweise vollständig, als Ersatz für andere Rohstoffe eingesetzt werden. Besonders bevorzugt werden die LCD's dabei in einem Temperaturbereich von 900 bis 1400°C, insbesondere 1100 bis 1300°C, thermisch behandelt.

Unter einem LCD wird in der vorliegenden Anmeldung ein Display verstanden, das neben den zwei Glasplatten zumindest noch die zwischen den beiden Glasplatten angeordneten Materialien, wie z.B. Flüssigkristalle, transparente Folien, Klebstoffe sowie mit dem Display verbundene Elektronik-Bauteile (z.B. Elektroden) enthält. Die Kunststoff-Gehäuse, die Hintergrundbeleuchtungen sowie gegebenenfalls die Polarisatorfolien werden in der Regel vorher abgetrennt und separat verwertet. Sie können aber auch bei dem erfindungsgemäßen Verfahren direkt mitverwertet

30

LCD's bestehen im wesentlichen aus 50 bis 95 Gew.-% Glas und 5 bis 50 Gew.-% Kunststofffolie, sowie einem geringen Anteil an Elektronik und Flüssigkristallen.

- Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren werden als LCD's vorzugsweise gebrauchte LCD's sowie LCD's aus dem Ausschuß aus der Produktion eingesetzt.
- Unter thermischer Behandlung wird in der vorliegenden Anmeldung die

 Behandlung von LCD's unter Energiezufuhr durch Energieträger, wie z.B.

 Gas, Kohle und Öl, und/oder unter Ausnutzung der in den LCD's

 vorhandenen Heizenergie verstanden. Die thermische Behandlung erfolgt
 dabei üblicherweise in thermischen Behandlungsanlagen, wie z.B.

 Kraftwerken, Vergasungsanlagen und Verbrennungsanlagen, vorzugsweise

 Verbrennungsanlagen, mit den dazu notwendigen Vorrichtungen, wie z.B.

 feststehenden Öfen oder Drehrohröfen.
 - Vorzugsweise werden die LCD's vor der erfindungsgemäßen Verwertung geschreddert und/oder gemahlen. Die Größe der geschredderten und/oder gemahlenen Teilchen liegt vorzugsweise im Bereich von 1 mm bis 5 cm.
 - Vorteilhaft an dem erfindungsgemäßen Verfahren ist, dass die aufwändige Abtrennung der Flüssigkristalle überflüssig ist und dass gleichzeitig die Gefahr der Bildung von giftigen Produkten, wie z.B. Dioxin, vermieden wird, da bei den hohen Temperaturen des erfindungsgemäßen Verfahrens sämtliche organischen Produkte zerstört werden.
 - Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens ist, dass das Ausgangsmaterial in gemahlener, geschredderter und/oder unzerkleinerter Form eingesetzt werden kann.

15

20

25

30

Darüber hinaus handelt es sich bei dem erfindungsgemäßen Verfahren um ein wirtschaftliches Verfahren, bei dem zudem noch eine stoffliche Verwertung der LCD's stattfindet.

Die erfindungsgemäße stoffliche Verwertung kann dabei in verschiedenen bevorzugten Ausführungsformen durchgeführt werden.

In einer ersten bevorzugten Ausführungsform werden die LCD's in einem Temperaturbereich von 900 bis 1300°C, vorzugsweise 1000 bis 1200°C selektiv aufgeschmolzen. Auf diese Weise ist es möglich, selbst unterschiedliche Glassorten, wie sie bei der Herstellung der Displays eingesetzt werden, zusammen zu verwerten. Das Glas wird in reiner Form wiedergewonnen, wenn auch zum Teil als Gemisch aus Natron-Kalk-Glas und Borosilikat-Glas. Darüber hinaus setzen sich bei dieser Ausführungsform die Metallteile, die beispielsweise von den Elektroden stammen, ab und können von der Glasschmelze abgetrennt werden.

Die Vorgehensweise zur Durchführung von selektiven Schmelzverfahren, bei denen die Temperatur sukzessive erhöht wird und zuerst die niederschmelzenden und dann die höherschmelzenden Teile aufschmelzen, ist dem Fachmann bekannt.

Die auf diese Weise gewonnenen Produkte finden Verwendung in der Baustoffindustrie oder im Straßenbau, beispielsweise als Isoliermaterial oder als Blähmaterial.

In einer zweiten bevorzugten Ausführungsform werden die LCD's mit anderen metallhaltigen Produkten, wie z.B. metallhaltigen Schlämmen und/oder Katalysatoren, vermischt und in einem Temperaturbereich von 1200 bis 1400°C, vorzugsweise 1250 bis 1350°C, thermisch behandelt.

Der Anteil an LCD's im Gesamtgemisch liegt dabei vorzugsweise im Bereich von 5 bis 50 Gew.-%.

Bei dieser Ausführungsform werden die LCD's eingesetzt, um die in den metallhaltigen Produkten enthaltenen unedlen Metalle, wie z.B. Eisen, Zink und Zinn, zu binden und von den edlen Metallen, wie z.B. Nickel, Kupfer und Kobalt, abzutrennen. Das Gemisch wird vorzugsweise in Schmelztiegeln oder Drehrohröfen aufgeschmolzen und danach in Tiegel gegossen. Nach dem Abkühlen wird die Schmelze gebrochen. Der untere Teil ist metallhaltig und enthält im wesentlichen die edlen Metalle wohingegen der obere Teil die Schlacke mit den unedlen Metallen enthält. Der Teil, der die edlen Metalle enthält wird der Metallrückgewinnung zugeführt und die Schlacke, die die unedlen Metalle enthält, findet beispielsweise Verwendung im Straßenbau.

15

20

10

5

Vorteilhaft an dieser Ausführungsform ist seine Wirtschaftlichkeit, denn die LCD's ersetzen bei dieser Ausführungsform zumindest einen Teil des üblicherweise eingesetzten Schmelzsandes, der bei diesem Verfahren notwendigerweise zugesetzt werden muß, um die unedlen Metalle zu binden. Darüber hinaus können bei dieser Ausführungsform zusätzlich auch zumindest ein Teil der, vorzugsweise alle, Elektronik-Bauteile der LCD's mitverwertet werden, da wie oben dargelegt, eine Abtrennung und Rückgewinnung zumindest der Edelmetalle stattfindet.

25

Ein weiterer signifikanter Vorteil ist der hohe Energie-Eintrag durch die in den LCD's enthaltenen Kunststofffolien. Dies soll durch die folgende Berechnung belegt werden:

Typischerweise setzt sich 1 Tonne LCD's zusammen aus:

30

830 kg Glas (83 Gew.-%) 149 kg Kunststofffolie (14,9 Gew.-%) 20 kg Elektronik

(2 Gew.-%) und

1 kg Flüssigkristalle

(0,1 Gew.-%).

Daraus ergibt sich die folgende Energiebetrachtung, bei der lediglich der 5 Glas- und Kunststoffanteil berücksichtigt wurde:

So beträgt beispielsweise der Heizwert für PE-Folie 46.000 kJ/kg. Bei 150 kg Kunststofffolie ergibt sich daraus ein Heizwert von 6.900.000 kJ. Der Energiebedarf um 1 kg Altglas zu schmelzen liegt im Bereich von 3.000 bis 6.500 kJ. Zur Schmelze von 830 kg Glas sind demnach 2.490.000 bis 5.395,000 kJ erforderlich.

Wie diese beispielhafte Energiebetrachtung zeigt, übersteigt der Heizwert der Kunststofffolien den Energiebedarf zum Aufschmelzen des Glases, d.h. dass schon ein Kunststoffanteil von 15 Gew.-% ausreicht um das LCD-Glas aufzuschmelzen. Folglich ist theoretisch kein zusätzlicher Energiebedarf notwendig. Der Energieeintrag erhöht sich zudem noch mit steigendem Kunststoffanteil, vorteilhaft durch Eintrag auch der Kunststoffgehäuse.

20

30

10

15

Für das oben beschriebene erfindungsgemäße Verfahren zur Gewinnung von edlen Metallen ergibt sich somit durch die Verwendung von LCD's als Roh- und/oder Zuschlagsstoff zusätzlich noch eine Reduzierung der notwendigen Energie, d.h. eine Energieeinsparung im Vergleich zum

25 Einsatz von Schmelzsand.

In einer dritten bevorzugten Ausführungsform werden die LCD's als Rohund/oder Zuschlagsstoff in Drehrohröfen in einem Temperaturbereich von 1100 bis 1300°C, vorzugsweise 1150 bis 1250°C, thermisch behandelt. Vorzugsweise führt die thermische Behandlung der LCD's in Drehrohröfen zur Ausbildung eines Schutzfilmes auf deren innerer Auskleidung.

10

15

20

Der Anteil der LCD's als Roh- und/oder Zuschlagsstoff in der Gesamtzusammensetzung liegt dabei vorzugsweise im Bereich von 1 bis 20 Gew.-%.

Drehrohröfen haben im allgemeinen eine Schamotte-Auskleidung, die durch aggressive Gase und Stoffe bei der Verbrennung von Industriemüll angegriffen wird. Folglich müssen diese Schamotte-Steine in regelmäßigen Abständen erneuert werden. Durch Zusatz von silikathaltigen Produkten, wie z.B. Sand, ist es möglich einen Schutzfilm auf den Wandungen auszubilden, der die Lebensdauer der Schamotte-Auskleidung deutlich verlängert.

Überraschenderweise wurde nun gefunden, dass anstelle der silikathaltigen Produkte auch LCD's verwendet werden können und ebenfalls zur Ausbildung eines Schutzfilmes auf der Schamotte-Auskleidung führen. Auf diese Weise ist es möglich, in den Drehrohröfen LCD's als Ersatzstoffe für zugekaufte, silikathaltige Produkte, wie z.B. Schmelzsände, einzusetzen. Der Einsatz der LCD's führt auch in dieser Ausführungsform zu einer Reduzierung der notwendigen Energie, da auch in dieser Ausführungsform der Heizwert der Kunststofffolien mitgenutzt werden kann, um das LCD-Glas aufzuschmelzen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch die Verwendung von LCD's in thermischen Behandlungsanlagen.

Bei der erfindungsgemäßen Verwendung werden als LCD's vorzugsweise gebrauchte LCD's sowie LCD's aus dem Ausschuß aus der Produktion eingesetzt.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden die LCD's in thermischen
Behandlungsanlagen als Roh- und/oder Zuschlagsstoff eingesetzt.
Besonders bevorzugt ist die Verwendung von LCD's in thermischen

10

15

Behandlungsanlagen, insbesondere Drehrohröfen, zur Ausbildung eines Schutzfilmes auf deren inneren Auskleidung.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden die LCD's in den thermischen Behandlungsanlagen als Energielieferant eingesetzt.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ferner die Verwendung von LCD's bei der Metallgewinnung. In einer ersten bevorzugten Ausführungsform werden die LCD's bei der Metallgewinnung dabei als Roh- und/oder Zuschlagsstoff eingesetzt. Ferner bevorzugt ist aber auch die Verwendung der LCD's bei der Metallgewinnung als Energielieferant.

Besonders bevorzugt ist die Verwendung der LCD's bei der Gewinnung von edlen Metallen aus Zusammensetzungen, die ein Gemisch aus unedlen und edlen Metalle enthalten. Bei diesen Zusammensetzungen kann es sich sowohl um in der Natur vorkommende Produkte, wie z.B. Erze, handeln als auch um industrielle Produkte, wie z.B. Katalysatoren, Elektro- bzw. Elektronikschrott, metallhaltige Schlämme sowie andere Zusammensetzungen, die ein Gemisch aus edlen und unedlen Metallen enthalten. Insbesondere finden die LCD's dabei Verwendung als Rohund/oder Zuschlagsstoff, der zumindest teilweise anstelle des üblicherweise eingesetzten Schmelzsandes eingesetzt wird.

25

10

Patentansprüche

- Verfahren zur stofflichen Verwertung von LCD's, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's zumindest teilweise als Ersatz für andere Rohstoffe eingesetzt werden.
- Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's in einem Temperaturbereich von 900 bis 1400°C thermisch behandelt werden.

 Verfahren gemäß Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's in einem Temperaturbereich von 900 bis 1300°C selektiv

aufgeschmolzen werden.

- 4. Verfahren gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's mit anderen metallhaltigen Produkten vermischt und in einem Temperaturbereich von 1200 bis 1400°C thermisch behandelt werden.
- 5. Verfahren gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die metallhaltigen Produkte zumindest einen Teil der Elektronik-Bauteile der LCD's enthalten.
- Verfahren gemäß Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass
 die LCD's eingesetzt werden, um die in den metallhaltigen Produkten enthaltenen unedlen Metalle zu binden und von den edlen Metallen abzutrennen.
- Verfahren gemäß mindestens einem der Ansprüche 4 bis 6, dadurch
 gekennzeichnet, dass die LCD's zumindest einen Teil des üblicherweise bei diesem Verfahren eingesetzten Schmelzsandes ersetzen.

8. Verfahren gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's als Roh- und/oder Zuschlagsstoff in Drehrohröfen in einem Temperaturbereich von 1100 bis 1300°C thermisch behandelt werden.

5

 Verfahren gemäß Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's als Roh- und/oder Zuschlagsstoff zur Ausbildung eines Schutzfilmes auf der inneren Auskleidung der Drehrohröfen führen.

10

10. Verfahren gemäß Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's zumindest einen Teil der üblicherweise bei diesem Verfahren eingesetzten silikathaltigen Verbindungen ersetzen.

11. Verwendung von LCD's als Roh- und/oder Zuschlagsstoff inthermischen Behandlungsanlagen.

12. Verwendung von LCD's gemäß Anspruch 11 als Roh- und/oder Zuschlagsstoff in thermischen Behandlungsanlagen zur Ausbildung

20

13. Verwendung von LCD's als Energielieferant in thermischen Behandlungsanlagen.

eines Schutzfilmes auf deren inneren Auskleidung.

14. Verwendung von LCD's bei der Metallgewinnung.

- 15. Verwendung gemäß Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's als Roh- und/oder Zuschlagsstoff eingesetzt werden.
- 16. Verwendung gemäß Anspruch 14 oder 15, dadurch gekennzeichnet,dass die LCD's als Energielieferant eingesetzt werden.

17. Verwendung von LCD's gemäß mindestens einem der Ansprüche 14 bis 16, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's bei der Gewinnung von edlen Metallen aus Zusammensetzungen, die ein Gemisch aus edlen und unedlen Metallen enthalten, eingesetzt werden.

5

18. Verwendung von LCD's gemäß Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's bei der Gewinnung von edlen Metallen aus Erzen eingesetzt werden.

10

19. Verwendung von LCD's gemäß Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's bei der Gewinnung von edlen Metallen aus Katalysatoren, Elektro- bzw. Elektronikschrott und metallhaltigen Schlämmen eingesetzt werden.

15

20



Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung von Flüssigkristall-Displays (LCD's = Liquid Crystal Displays) sowie Verfahren zu deren Verwertung. Die erfindungsgemäßen Verfahren sind dadurch gekennzeichnet, dass die LCD's zumindest teilweise als Ersatz für andere Rohstoffe eingesetzt werden. Besonders bevorzugt werden die LCD's dabei in einem Temperaturbereich von 900 bis 1400°C thermisch behandelt.

10

5

15

20.

